

3/3, DS, BA/5

DJALOG(R)File 352:Derwent WPI

(c) 2005 Thomson Derwent All rts. reserv.

013581788

WPI Acc No: 2001-065995/200108

XRAM Acc No: C01-018991

Regeneration of styrene resin particle for molded product, involves the fluidity of the resin to preset value and extruded to form a pellet followed by impregnation of foaming agent

Patent Assignee: HITACHI CHEM CO LTD (HITB )

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 2000309659	A	20001107	JP 99117741	A	19990426	200108 B

Priority Applications (No Type Date): JP 99117741 A 19990426

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 2000309659	A		6 C08J-009/18	

Abstract (Basic): JP 2000309659 A

Abstract (Basic):

123.TXT

NOVELTY - The fluidity of the resin is set to 5-15 g/10 min at 220-260degreesC and extruded to form a styrene resin pellet. Subsequently, foaming agent is impregnated to the pellet.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is also included for styrene resin foamed product which is obtained by foaming the regenerated styrene resin particle.

USE - For forming styrene resin molded product.

ADVANTAGE - The exterior surface of the styrene resin molded product is good as the styrene resin particle obtained by regeneration is spherical.

pp: 6 DwgNo 0/0

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-309659

(P2000-309659A)

(43) 公開日 平成12年11月7日 (2000.11.7)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-コ-ト* (参考)
C 0 8 J 9/18	C E T	C 0 8 J 9/18	C E T 4 F 0 7 4
B 2 9 B 9/06		B 2 9 B 9/06	4 F 2 0 1
17/00	Z A B	17/00	Z A B 4 F 2 1 2
C 0 8 J 11/06		C 0 8 J 11/06	4 F 3 0 1
// B 2 9 C 44/00		B 2 9 C 67/22	

審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 6 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-117741

(22) 出願日 平成11年4月26日 (1999.4.26)

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 時田 英明

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成工業株式会社五井工場内

(72) 発明者 加藤 哲也

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成工業株式会社五井工場内

(74) 代理人 100071559

弁理士 若林 邦彦

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及び発泡スチレン系樹脂成形品

(57) 【要約】

【課題】 再生発泡性スチレン系樹脂粒子が球状であり、外観及び融着が良好な発泡スチレン成形品を得ることができる再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及び発泡スチレン系樹脂成形品を提供する。

【解決手段】 樹脂流動性 (メルトフローインデックス) が  $5 \sim 15 \text{ g} / 10 \text{ 分}$  の範囲にある発泡性スチレン系樹脂を、押出機の加熱温度を  $220 \sim 260^\circ \text{C}$  としてペレットにした後、発泡剤を含浸する再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及び発泡スチレン系樹脂成形品。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 樹脂流動性（メルトフローインデックス）が5～15g/10分の範囲にある発泡性スチレン系樹脂を、押出機の加熱温度を220～260℃としてペレットにした後、発泡剤を含浸することを特徴とする再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法。

【請求項2】 ペレットの直径を押出機のダイス径に対して、0.4～0.6とした請求項1記載の再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法。

【請求項3】 ペレットの長さを押出機のダイス径に対して、0.7～1.0とした請求項1または2に記載の再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法。

【請求項4】 請求項1～3のいずれか1項に記載の製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子。

【請求項5】 請求項4に記載の再生発泡性スチレン系樹脂粒子を発泡成形して得られる発泡スチレン系樹脂成形品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明に属する技術分野】本発明は、流動性（メルトフローインデックス）が5～15g/10分の範囲にある発泡性スチレン系樹脂を、押出機でペレットにした後、発泡剤を含浸して得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及び発泡スチレン系樹脂成形品に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来より、スチレン系樹脂の果たす役割は大きく、生活用品から工業材料まで多方面に使用されている。スチレン系樹脂の製造法としては、スチレンモノマーを水性媒体中に懸濁させ、重合開始剤または熱によりラジカル重合して樹脂粒子を得る方法、またはスチレンモノマーを塊状重合あるいは乳化重合してペレット状とする方法等が知られている。

【0003】近年、発泡性スチレン系樹脂粒子の製造時の規格外品及び発泡スチレン系樹脂成形体の廃棄物を資源として再利用するリサイクルする技術、または高付加価値品の開発は盛んになっている。スチレン系樹脂発泡成形体は使用後は焼却処分されるか、または熱収縮され、熱収縮塊の形で回収される。製造時の規格外品、熱収縮された熱収縮塊等は、主に射出成形による雑貨品、押出成形による建材等の限られた用途にのみ利用され、その用途の拡大が急がれている。

【0004】一方、リサイクルという定義から、発泡性スチレン系樹脂粒子を発泡成形し、最終的にスチレン系樹脂発泡成形体として使用されたスチレン系樹脂を、スチレン系樹脂粒子として利用するのではなく、発泡性スチレン系樹脂粒子として再利用することが好ましいと考えられる。しかし、現在のところスチレン系樹脂発泡成形体から回収された熱収縮塊を発泡性スチレン系樹脂粒

子として工業的に再生されている例は少ない。

【0005】発泡スチレン系樹脂成形品の熱収縮塊等から発泡性スチレン系樹脂粒子を再生する方法として、上記熱収縮塊を粉砕し押出機でペレット状にして、これに発泡剤を含浸する方法が最も一般的であると考えられる。しかし、押出機においてストランド・ダイス/ペレタイザーでペレット状とした場合、樹脂はペレタイザーの巻き込み回転により、延伸方向に引っ張り応力が加わり、冷却、固化して得られるスチレン系樹脂には延伸ひずみが生じる。このため、発泡剤を含浸すると樹脂が軟化されると同時に延伸ひずみの緩和が起こり、得られた発泡性スチレン系樹脂は延伸方向に収縮し、発泡性スチレン系樹脂粒子の形状が扁平状となる問題があった。

【0006】そこで、ペレットに延伸応力を加えぬように、ダイスから押し出された樹脂をダイス面で回転カッターによりカットするミニペレット法や、押出機内で溶融した樹脂に発泡剤を圧入して実質的に未発泡の状態でペレット状に押し出すクエンチ法（ガス含浸法）などが開発されたが生産性が悪い上にコスト面で不利であり、工業的に実用化することは難しいと考えられる。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記のミニペレット法またははクエンチ法を用いずに、比較的生産能力の高い押出機（ストランド・ダイス/ペレタイザー）によりペレット状にした後、発泡剤を含浸させて発泡性スチレン系樹脂粒子とした場合、その形状が扁平状でなく球状の再生発泡性スチレン系樹脂粒子を得る製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及びこの粒子を発泡成形して得られる発泡スチレン系樹脂成形品を提供するものである。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】本発明は、樹脂流動性（メルトフローインデックス）が5～15g/10分の範囲にある発泡性スチレン系樹脂を、押出機の加熱温度を220～260℃としてペレットにした後、発泡剤を含浸する再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及び発泡スチレン系樹脂成形品に関する。

【0009】本発明においては、ペレットの直径が押出機のダイス径に対して、0.4～0.6であることが好ましい。また、本発明においては、ペレットの長さが押出機のダイス径に対して、0.7～1.0であることが好ましい。

## 【0010】

【発明の実施の形態】次に、本発明の再生発泡性スチレン系樹脂粒子の製造法、この製造法により得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子及び発泡スチレン系成形品の実施の形態について説明する。

【0011】本発明における樹脂流動性（メルトフローインデックス）の測定は、JIS K 7210 に準じて行なわ

れる。すなわち、発泡性スチレン系樹脂に200℃で5 kgf/cm<sup>2</sup>の荷重をかけ、1mmの円筒から10分間に流れ出る樹脂量を測定した。本発明におけるスチレン系樹脂の樹脂流動性は5~15g/10分の範囲とされる。樹脂流動性が5g/10分未満であると、得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状がタマゴ状となってしまう、また15g/10分を超えると、スチレン系樹脂が過度に軟化されるため、カット不良で所定の大きさのペレットを得ることが出来ない。

【0012】本発明においては、スチレン系樹脂発泡成形体の熱収縮塊またはビーズ状のスチレン系樹脂をストランドガイザー方式の押出機でペレットにする際、押出機の加熱温度は220~260℃の範囲とされる。上記の加熱温度では延伸方向に引っ張り応力が加わりにくく、得られるスチレン系樹脂には延伸ひずみが残留しにくいいため、発泡剤を含浸して得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子は収縮がなく球状となる。加熱温度が220℃未満では、樹脂に引っ張り応力が加わり延伸ひずみが残留するため、発泡剤を含浸して得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子は収縮し扁平状となる。また加熱温度が260℃を超えると、樹脂が過度に軟化されるためカット不良を引き起こす。

【0013】本発明においては、スチレン系樹脂のペレットの直径は押出機のダイス径に対して0.4~0.6にカットすることが好ましい。ペレットの直径が押出機のダイス径に対して0.4未満では、延伸方向に引っ張り応力が加わり、発泡剤を含浸すると、発泡粒子の形状が扁平状になる傾向があり、また0.6を超えると、粒子の体積が大きくなりスチレン系樹脂粒子の中心部分に芯とよばれる未含浸部分ができ、予備発泡した際に、一つの発泡粒子内に発泡部分と未発泡部分が混在する傾向がある。

【0014】本発明においては、スチレン系樹脂のペレットの長さは、ダイス径に対して0.7~1.0にカットすることが好ましい。ペレットの長さがダイス径に対して0.7未満では、発泡剤を含浸すると、発泡粒子形状が円盤状になる傾向があり、また1.0を超えると、発泡剤を含浸して得た再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状が長細くタマゴ状となってしまう、予備発泡粒子とし金型内に充填するとき、肉厚の薄い部分がある場合に発泡粒子が均一に充填せず、外観の良好な成形品が得られない傾向がある。

【0015】本発明におけるスチレン系樹脂とは、スチレンを主成分として50重量%以上含む共重合体、またはポリスチレンを50重量%以上を有する樹脂混合物をいう。スチレンと共重合させる共重合成分として、アクリロニトリル、ブタジエン、アクリル酸エステル、メタクリル酸、無水マレイン酸等が挙げられ、ポリスチレンと混合しうる樹脂としては、ポリアクリロニトリル、ポリブタジエン、ポリアクリル酸エステル、ポリメタクリ

ル酸エステル、ポリエチレン、ポリ酢酸ビニル等が挙げられる。

【0016】本発明におけるスチレン系樹脂には、通常成形材料を製造する際に添加される顔料、滑剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤などが含まれていてもよい。また、スチレン系樹脂を主成分とした樹脂材料に他の素材、例えば、ガラス、炭素、炭酸カルシウム、タルクなど無機物、金、銀、銅などの金属類が混合されていてもよい。

【0017】本発明におけるペレットへの発泡剤の含浸は、ペレットを有機高分子系分散剤を含む水性媒体中に懸濁させた状態で、加熱保持し発泡剤を圧入する方法により行われる。この工程に使用する装置としては、攪拌羽根付きの耐圧反応容器が好ましい。

【0018】本発明における発泡剤を含浸する分散剤は、有機高分子系分散剤や難溶性無機塩などが使用され、両者を併用することも出来る。有機高分子系分散剤としては、ポリビニルアルコール、ポリビニルプロリドン等が挙げられ、その使用量は発泡性スチレン系樹脂に対して0.005~0.1重量%が好ましく、難溶性無機塩としてはリン酸マグネシウム、ピロリン酸マグネシウム、リン酸三カルシウム等を挙げられ、その使用量は発泡性スチレン系樹脂に対して0.1~1重量%の範囲内で使用することが好ましい。またこれら分散剤と微量の界面活性剤を併用しても良い。

【0019】本発明で用いられる発泡剤としては、例えばプロパン、n-ブタン、イソブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素及びシクロペンタン、シクロヘキサン等の環状脂肪族炭化水素などを挙げることができる。発泡剤の添加量は、発泡性スチレン系樹脂に対して6~12重量%が好ましく、8~10重量%がより好ましい。発泡剤の添加量が6重量%未満では、得られた再生発泡性スチレン系樹脂を加熱して予備発泡粒子とする際、発泡能力が不十分となり高倍率に発泡できない傾向があり、また12重量%を超えると懸濁の安定性が低下し、合一粒子が生じやすくなり、かつ得られた予備発泡粒子の気泡径が大きくなって、機械的物性の低下を招く傾向がある。

【0020】本発明における発泡剤の含浸温度は、90~130℃が好ましく、100~120℃がより好ましい。含浸温度が90℃未満であると、得られる再生発泡性スチレン系樹脂粒子が球状とならない傾向があり、また130℃を超えると、懸濁の安定性が低下し、合一粒子が生じやすくなる傾向がある。また発泡剤の含浸時間は、5時間以上が好ましく、6時間以上がより好ましい。含浸時間が5時間未満であると、得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子が球状とならない傾向がある。

【0021】本発明においては、上記水性媒体中に通常用いられる可塑剤、気泡調整剤等を添加することができる。可塑剤としてはスチレン単量体、トルエン、エチルベンゼン、パラフィン等、気泡調整剤としてはアミド化

合物、非イオン系の界面活性剤等を挙げられる。

【0022】本発明において得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子は、脱水、乾燥した後、適宜分級され、また改質剤により表面被覆することができる。これらの諸工程は従来既知の方法が適用できる。

#### 【0023】

【実施例】次に実施例により本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらにより制限されるものではない。

#### 【0024】実施例 1

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 5.1g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、押出機（池貝鉄鋼株式会社製、PCM-30）のストランドダイスの径が 3mm のものを用いて、加熱温度 240℃ で押し出した後、ペレタイザーにより、ペレットの直径が 1.5mm、長さが 2.3mm となるようカットした。内容積 4 リットルのオートクレーブに水 2100g 及び懸濁剤としてポリビニルアルコール（日本合成化学工業製、ゴーセノール KH-20）25g、リン酸三カルシウム 63g、活性剤としてドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1.3g を加えて水性媒体とした。次に上記のペレット 900g を攪拌速度 300rpm で懸濁した。その後 90℃ まで一定昇温し混合ボタン（i-ボタン/n-ボタン比 = 4/6 : 重量比）を 43g づつ、2 回に分けて圧入し、115℃ まで昇温して 8 時間以上保持し、30℃ 以下になるまで冷却して取り出し、再生発泡性スチレン系樹脂粒子を得た。

【0025】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子は球状であった。この再生発泡性スチレン系樹脂粒子を内容積 35 リットルのバッチ発泡機に投入し、吹き込み蒸気圧 0.3kgf/cm<sup>2</sup> で、嵩密度 0.02g/cm<sup>3</sup> の予備発泡粒子を得た。得られた予備発泡粒子を 24 時間放置した後、発泡スチレン系樹脂成形機（ダイセン工業製、VS-500）を用いて発泡成形品を得た。得られた発泡成形品は、発泡粒子同士の融着も良く、外観の良好なものであった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

#### 【0026】実施例 2

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 7.7g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱温度 240℃ で押し出し、ペレットの直径が 1.4mm、長さが 2.2mm となるようカットした以外は実施例 1 と同様にして再生発泡性スチレン系樹脂粒子を製造した。

【0027】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状は球形であり、発泡成形体にしたときの融着性、外観とも良好であった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

#### 【0028】実施例 3

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 13.4g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱温度 240℃ で押し出し、ペレットの直径が 1.8mm、長さが 2.8mm となるようカットした以外は実施

例 1 と同様にして再生発泡性スチレン系樹脂粒子を製造した。

【0029】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状は球形であり、発泡成形体にしたときの融着性、外観とも良好であった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

#### 【0030】比較例 1

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 7.6g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱温度 200℃ で押し出し、ペレットの直径が 1.5mm、長さが 2.8mm となるようカットした。上記ペレットを実施例 1 と同様にして再生発泡性スチレン系樹脂粒子を製造した。

【0031】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状は扁平となっており、それを予備発泡粒子として金型内に充填したとき、型の肉厚が薄い部分では発泡粒子が均一に充填せず、良好な発泡成形品が得られなかった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

#### 【0032】比較例 2

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 3.1g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱温度 200℃ で押し出し、ペレットの直径が 1.6mm、長さが 2.8mm となるようカットした以外は実施例 1 と同様にして再生発泡性スチレン系樹脂粒子を製造した。

【0033】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状は扁平となっており、それを予備発泡粒子として金型内に充填したとき、型の肉厚が薄い部分では発泡粒子が均一に充填せず、良好な成形品が得られなかった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

#### 【0034】比較例 3

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 13.7g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱温度を 200℃ で押し出し、ペレットの直径が 1.8mm、長さが 3.0mm となるようカットした以外は実施例 1 と同様にして再生発泡性スチレン系樹脂粒子を製造した。

【0035】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状は扁平となっており、それを予備発泡粒子として金型内に充填したとき、型の肉厚が薄い部分では発泡粒子が均一に充填せず、良好な成形品が得られなかった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

#### 【0036】比較例 4

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 3.0g/10 分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱温度を 240℃ で押し出し、ペレットの直径が 1.8mm、長さが 3.5mm となるようカットした。上記ペレットを実施例 1 と同様にして再生発泡性スチレン系樹脂粒子を製造した。

【0037】得られた再生発泡性スチレン系樹脂粒子の形状はタマゴ状となっており、それを予備発泡粒子して

成形体したとき、融着が良好であるが、成形品外観に凹部が多かった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

【0038】比較例 5

樹脂流動性（メルトフローインデックス）が 16.0g  
／10分の発泡性ポリスチレン樹脂 1200g を、加熱

温度 240℃ で押し出したが、樹脂が過度に軟化され、  
カット不良で所定の大きさのペレットを得ることが出来  
なかった。試験結果をまとめて表 1 に示す。

【0039】

【表 1】

	樹脂 流動性 (g/10分)	加熱 温度 (℃)	ペレット*1		発泡性 スチレン系 樹脂 粒子の 形状	成形品	
			直径 (mm)	長さ (mm)		外観	融着
実施例 1	5.1	240	1.5 (0.5)	2.8 (0.77)	球状	良好	良好
2	7.7	240	1.4 (0.47)	2.2 (0.73)	球状	良好	良好
3	13.4	240	1.8 (0.6)	2.8 (0.93)	球状	良好	良好
比較例 1	7.6	200	1.5 (0.5)	2.8 (0.93)	扁平	評価 不能	充填性 不良
2	3.1	200	1.6 (0.53)	2.8 (0.93)	扁平	評価 不能	充填性 不良
3	13.7	200	1.8 (0.6)	3.0 (1.0)	扁平	評価 不能	充填性 不良
4	3.0	240	1.8 (0.6)	3.5 (1.17)	片状	凹部 多い	良好
5	16.0	240	カット不良		—	—	—

\*1 カット内の数字は、直径(3mm)に相当するペレットの数。

【0040】

【発明の効果】本発明により得られる再生発泡性スチレ

ン系樹脂粒子は球状であり、これにより外観及び融着が  
良好な発泡スチレン系樹脂成形品を得ることができる。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>7</sup>

B29K 25:00

105:04

C08L 25:06

識別記号

F I

テマコード (参考)

(72)発明者 中嶋 弘

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成  
工業株式会社五井工場内

(72)発明者 服部 勇

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成  
工業株式会社五井工場内

Fターム(参考) 4F074 AA09 AA12 AA17 AA32 AA41  
BA36 BA37 BA38 BA39 BA40  
BC01 CA23 CA34 CA35 CA38  
CA39 CA48 CA49 CA51 CC04X  
CC05X CC24X CC32X CC32Y  
CC45  
4F201 AA13 AC01 AG20 AH26 AH48  
BA02 BC01 BC13 BC17 BC19  
BC21 BD05 BL12 BL42 BL48  
4F212 AA13 AC01 AG20 AH26 AH48  
UA01 UB01 UE30  
4F301 AA15 AD02 AD10 BA01 BA21  
BC26 BD08 BF16 BF29 BF32  
CA09 CA11

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**